四种医用放射性核素废水排放限值推导

姜文华,彭慧,党磊,许莹,王寅宁 (生态环境部核与辐射安全中心辐射源部,北京102488)

摘要:为保障人员和环境的辐射安全,放射性核素的排放应施加相应的监管控制。本研究基于国际原子能机构推荐的放射性物质排放环境影响评价模型,分析 ^{99m}Tc 、 ^{131}I 、 ^{90}Y 、 ^{223}Ra 四种医用放射性核素废水解控排放限值,四种核素的解控限值分别为 3.14×10^8 Bq/a、 2.75×10^7 Bq/a、 4.30×10^7 Bq/a、 1.45×10^7 Bq/a。通过确定核医学医疗机构每年放射性废水的产生量,可以将年排放量转换为排放活度浓度值。

关键词: 医用放射性核素; 废水; 解控; 限值

中图分类号 TL77

国家原子能机构与其他七部委联合发布的《医用同位素中长期发展规划(2021—2035 年)》,旨在推动我国逐步构建一个稳定且自主的医用同位素供应保障体系,以满足人民日益增长的健康需求[1]。随着核医学产业的迅猛发展^[2],医用放射性核素废水的排放对环境带来挑战。根据《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》,放射性物质的排放应不超过审管部门认可的排放限值,这包括排放的总量和浓度。核医学科放射性药物的应用在国民健康领域扮演着至关重要的角色,其作用不可或缺。与此同时,随着新型放射性药物的不断涌现,核医学废水排放管理的要求也成为备受关注的议题^[3]。既要满足人民群众对健康的需求,又确保核医学废水排放不会对其他公众和环境造成额外的放射性负担,必须对核医学废水排放实施恰当的监管措施。监管的目标是确保排放对其他公众的剂量限制在 0.1mSv/a 至 1mSv/a 的范围内。在排除、豁免、解控推导活度(活度浓度)安全报告指南[4]中,以实际场景下核素对公众有效剂量 10μSv/a 为标准,以及低概率场景下对公众有效剂量 1mSv/a 为标准,进行了活度(活度浓度)的推导。国际原子能机构针对放射性核素在医学、工业和研究领域应用的解控,出版了相关的技术文件^[5],这些文件与豁免、解控活度推导安全报告指南采用了相同的评价标准,仅考虑了实际场景下核素排放对公众照射剂量的标准。本文依据国家原子能机构关于解控的安全标准指导^[6],采用液态排出物对环境影响评价的模型^[7],以实际场景下核素排放对公众照射剂量为 10μSv/a 为限制,分析并探讨了四种医用放射性核素废水的排放限值。

1 对象和方法

1.1 对象

在医疗机构核医学应用过程中产生的放射性液体废物,最终会排入普通的下水道系统。通过下水系统排放的放射性核素可能对公众和环境造成影响。本文评估 99mTc、131I、90Y、223Ra 四种放射性核素的这种影响,考虑了放射性核素在两种不同介质中滞留的极端情况,计算对人员的辐射照射剂量。一种情形是放射性核素全部滞留在污水处理站的污泥

中,对污水处理站的工作人员产生辐射影响,污泥可能被焚烧,产生受污染的空气或固体残留物,或者污泥被处理或用作肥料,引起直接外照射或产生类似放射性气体排放后核素沉积产生外照射。另外一种情形是放射性核素全部滞留在水体中,并随着污水处理站的排放进入地表水体,如河流、湖泊、河口或海洋,液体废水排放到河流后,污水将被输送到下游区域,由于河水的潜在用途可能导致辐射

收稿日期: 2025-1-07

作者简介: 姜文华, 女, 1981年出生, 2008年苏州大学获硕士学位, 研究领域为辐射防护, jiangwenhua@chinansc.cn

通讯作者: 王寅宁,高工,wangyinning@chinansc.cn

First author: JIIANG Wwenhua,female,born in 1981,graduated from Soochow University with a master degree in 2008,focus on radiation protection.

Correspondance author: WANG Yinning, senior engineer, wang yinning@chinansc.cn

照射,包括摄入从河水中捕捉的鱼、摄入被河水灌 溉土地的食物等。

1.1.1 污泥排放模型

液态废水排放的放射性核素全部滞留在污泥中 对人员的照射影响,一是考虑污水处理站的工作人 员处理污泥时受到的辐射影响,二是考虑污水处理 站产生的污泥被送往垃圾焚烧厂,垃圾焚烧厂工作 人员受到的辐射影响。

假设全年排放的废水中含有 1Bq 的放射性核素,计算出其对相关工作人员可能产生的辐射剂量。随后,依据豁免原则所设定的剂量标准,即全身有效剂量限值为 10μSv/a,与排放 1Bq 放射性核素所造成的剂量进行比较,从而推算出放射性核素的导出排放水平。通过对污水处理站的调查,小型污水处理站每日产生约 3 吨污泥,而中型污水处理站每日则为 6 至 7 吨。为了保守估算,本文按照小型污水处理站的污泥产量,即每天 1×10⁶kg 来进行估算。假设污泥密度为 1000kg/m³,深度为 1m,则污泥放射性核素的表面活度为 C 등表为 1×10⁻³Bg/m²。

污水处理站的污泥被送往垃圾焚烧厂,根据相关报道^[8],本文保守假定生活垃圾焚烧站日焚烧垃圾 50 吨,其中 3 吨为含有放射性核素的污泥。参考住房城乡建设部《建筑防烟排烟系统技术标准》(GB51251-2017)^[9]对不同火灾规模下的排烟量要求,本文保守选取 5m³/s 要求的排烟量。

垃圾焚烧时空气中放射性核素浓度计算公式:

$$C_{\frac{m}{2}} = \frac{P_{p} Q_{ai}}{V}$$

(1)

式中, C_{*} 一污泥焚烧时空气中放射性核素浓度; P_{p} 一关注点风向频率因子(0.25); Q_{oi} 一放射性核素 i 焚烧时向大气的平均排放速率(Bq/s);释放点排气筒或烟囱的空气流量($5m^{3}/s$)。

其中,
$$Q$$
 ai = $\frac{A_{i}FRF_{i}}{T_{r}}$

(2)

式中, A_i 一污泥焚烧时所含放射性核素活度; FRF_i 一燃烧时放射性核素释放的份额,99mTc、131I、90Y、223Ra 分别为 1×10^{-2} ,0.5, 1×10^{-2} , 1×10^{-3} 1101; T_i 一燃烧持续的时间(有放射性的污泥每天焚烧 1h,年焚烧 250 天,250h/a)。

1.1.2 河水排放模型

液体废水排放全部滞留在污水中并被排放到地表水的河水中,假设接收水体的河水宽度 \overline{B} 为50m,在河的下游排放口同侧距离 x 处 1000m 有居民使用河水养鱼和灌溉农田。农田每年 6 个月的时间里有 120 天的灌溉时间,每天灌溉水量为 9L/m²,农作物的土地为泥炭土。该情形假定全年排放3.7E+10Bq 开展评估。

1.1.2.1 河水中放射核素浓度计算

参考国际原子能机构 19 号报告^[4]表 3 \overline{B} =50m 时,对应的河流年平均流量 \overline{q}_r =30m³/s,因此 30 年河流最低流量 q_r = \overline{q}_r /3=10m³/s,根据 19 号报告表 3, q_r =10m³/s 时,河流宽 B=28.8m,河水深 D=

0.48m, 因此河水的净水速
$$U = \frac{q}{BD} = 0.72 \text{m/s}$$
。

沿相同的横向线和纵向线最小浓度达到最大浓度的一半时认为纵向实现完全混合,实现纵向完全混合的纵向距离 L_z =7D。用水地点 x=1000m 大于纵向完全混合距离,需考虑横向混合可能不完全的因素,需要用部分混合系数 P_r 修正河水中的放射性核素。

部分混合修正系数 $A = \frac{1.5Dx}{B^2}$ =0.9,由 19 号报告表 4 可得 P=2.7。

河水中放射性核素总活度计算公式:

$$C_{\text{水总}} = \frac{Q_{i}}{q_{r}} \exp\left(-\frac{\lambda_{i} \times X_{r}}{U_{r}}\right) P_{r}.$$
(3)

式中, $C_{*^{i}}$ 一水中放射性核素总浓度 (Bq/m^3);Q一放射性核素 i 平均排放速率(本文中

$$Q_{i} = 3.7 \times 10^{10} / 3.15 \times 10^{7} = 1170 \text{Bq/s}$$
;

 q_r —河水平均流速($10\text{m}^3/\text{s}$); λ_i —放射性 核素 i 衰变常数, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 ^{131}I 、 ^{90}Y 、 ^{223}Ra 分别为 $3.20\times10^{-5}\text{s}^{-1}$ 、 $9.98\times10^{-7}\text{s}^{-1}$ 、 $3.00\times10^{-6}\text{s}^{-1}$ 、 $7.02\times10^{-7}\text{s}^{-1}$; x —排放点与接收点的距离(1000m); U —淡水净速度(0.72m/s); P $_r$ —部分混合 修正系数,2.7。

1.1.2.2 河岸沉积物中放射核素浓度计算

水中溶解的放射性核素与沉积物相互作用时, 溶解相中的浓度会由于沉积颗粒物吸收放射性核素 而下降。因此,悬浮泥沙和河岸及河床泥沙中的放 射性核素会增加。

河水中溶解的放射性核素浓度计算公式:

$$C \quad \text{ker} = \frac{C_{\text{ker}}}{1 + 0.001 K_{\text{d}} S_{\text{s}}}.$$

(4)

式中, $C_{\text{**.} \text{***}}$ 一水相中溶解放射性核素浓度 (Bq/m³); K_{d} 一溶解相和沉积物吸附相之间放射性核素交换分布系数(L/kg), $^{99\text{m}}$ Tc、 131 I、 90 Y、 223 Ra 分别为 5、10、40、500[11]; S_{s} 一悬浮沉积物浓度(kg/m³),悬浮沉积物浓度取决于水体的特征,值在很大的范围内变动,可以采用场址特定的值,也可以选择缺省值,本文选择缺省值 5×10^{-2} kg/m³[7]。

悬浮沉积物中吸收的放射性核素浓度 $C_{\&n}$ 计算公式:

$$C$$
 悬沉 = $\frac{0.001K \text{ d}C}{1+0.001K \text{ d}S}$ = 0.001

$$K dC _{\text{k} ext{Reg}}.$$
 (5)

河床底部沉积物放射性核素浓度 $C_{\text{\tiny кл}}$ 计算公式:

$$C$$
 床沉 = $\frac{(0.1)(0.001)K \text{ d}C}{1+0.001K \text{ d}S} \times$

$$\frac{1-\exp(-\lambda_{-i}T_{-e})}{\lambda_{-i}T_{-e}} = 0.1C \quad \text{with} \times \frac{1-\exp(-\lambda_{-i}T_{-e})}{\lambda_{-i}T_{-e}} \; .$$

(6)

式中, C_{Rin} 一河床沉积物中放射性核素浓度(Bq/kg); T_e 一有效累积时间(s),本文选择缺省值 3.15×10^7 s(1 年)。

河岸沉积物放射性核素浓度 C 岸流计算公式:

$$C$$
 岸沉 = $\frac{(0.1)(0.001)K}{1+0.001K} \frac{d^{2} \times 60 \times C}{d^{2} \times 60 \times C} \times 60 \times C$

$$\frac{1 - \exp(-\lambda \quad {}_{i}T \quad {}_{e})}{\lambda \quad {}_{i}T \quad {}_{e}} = 60C \quad \text{kg}$$

(7)

1.1.2.3 淡水鱼中放射核素浓度计算 排放的放射性核素向水中食品传输的计算公式:

$$C$$
 $\underline{a} = C$ $_{\text{k} \text{R} \text{M}} \times B$ $_{\text{p}} / 1000$

(8)

式中, C_{\pm} 一淡水鱼中放射性核素浓度 (Bq/kg); B_p 一淡水鱼中放射性核素浓度与其在水中溶解浓度的平衡比率,称为生物富集系数 (Bq·kg⁻¹/Bq·L⁻¹), ^{99m}Tc 、 ^{131}I 、 ^{90}Y 、 ^{223}Ra 分别

为 20、40、30、50[11]。

1.1.2.4 引水灌溉陆生食物中放射性核素浓度 引水灌溉陆生食物中放射性核素浓度有两个来 源,其一是引用河水在农作物表面沉积的放射性核 素浓度,另一个是农作物从土壤中摄取的放射性核 素浓度。

河水灌溉时的放射性核素的沉积速率计算公式:

$$d = C_{\chi \otimes \mathcal{M}} \times I_{\chi}$$

$$m^{-2} \cdot d^{-1}] \times \frac{120d}{180d} = 6 \times 10^{-3} \text{ (m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \text{d}^{-1})$$
 ,年

平均灌溉速率
$$I$$
 $_{\text{水(年)}} = 6 \times 10^{-3} \times \frac{180\text{d}}{365\text{d}} = 3 \times 10^{-3} \text{ (m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \text{d}^{-1})$ 。

使用放射性核素排放接受水体灌溉使陆生食物 表面沉积的放射性核素的浓度的计算公式:

$$C$$
 $_{ ext{$ ilde{ta}$}}=rac{d^{'}}{\lambda} lpha \left[1-\exp\left(-\lambda - rac{ ilde{ta}}{\hbar t} - e
ight)
ight]}{\lambda - rac{ ilde{ta}}{\hbar t}}$

(9)

式中, C_{tik} 一新鲜农作物表面沉积的放射性核素浓度(Bq/kg); α 一每单位质量可食用农作物部分拦截沉积的活度份额,或质量拦截系数,农作物选用新鲜重量分数 $0.3m^2/kg$; λ_{tif} 一农作物中放射性核素活度浓度降低的有效衰减系数(d^{-1}),

$$\lambda$$
 _{植有} = λ _i + λ _w, λ w一除了非放射性衰变的其他过程而导致的沉积在农作物表面放射性核素浓度的衰变速率常数(0.05d⁻¹)^[7],^{99m}Tc、¹³¹I、⁹⁰Y、²²³Ra 的 λ _{植有}分别为 2.82、0.14、0.31、0.11; t _e—农作物在生长季节中暴露于污染的持续时间(120 王)

引水灌溉陆生食物中从土壤摄取的放射性核素 浓度

$$\begin{array}{cccc} C & _{\underline{\text{d}}\pm} = F & _{\text{V}} \times C & _{\underline{\text{\pm}}} = F & _{\text{V}} \times \\ \\ \frac{d \cdot & _{\underline{\text{$[1$-exp}}} \left(-\lambda & _{\underline{\text{\pm}}\overline{\text{4}}} t & _{\underline{\text{b}}}\right)\right]}{\rho & \lambda & _{\underline{\text{\pm}}\overline{\text{4}}}}. \end{array} \tag{10) 式中, $C_{\underline{\text{$4$}\pm$}}$$$

新鲜农作物从土壤中摄取的放射性核素浓度 (Bq/kg); Fv—新鲜农作物可食用部分从土壤中 吸收的放射性核素的浓度因子(Bq/kg), ^{99m}Tc 、 ^{131}I 、 ^{90}Y 、 ^{223}Ra 分别为 5、0.02、0.003、 $0.04^{[7]}$; λ $_{\pm\pi}$ —土壤根部放射性核素活度浓度降低的有效衰减

系数
$$(d^{-1})$$
 , λ _{土有} = λ _i + λ _s , λ s一除了

非放射性衰变的其他过程而导致的土壤根部放射性核素浓度的衰变速率常数(d^{-1}), ^{99m}Tc 、 ^{131}I 、 ^{90}Y 、 ^{226}Ra 的 λ_s 分别为 0.0014、0.0014、0、0 $^{[7]}$, ^{99m}Tc 、 ^{131}I 、 ^{90}Y 、 ^{223}Ra 的 $\lambda_{\pm a}$ 分别为 2.77、0.09、0.26、0.06; t_b 一放射性物质排放的时间(医院运行 30 年,即 1.10E+4 天)。

农作物中放射性核素浓度 C 植为:

$$C$$
 $_{ti} = C$ $_{tit} + C$ $_{tit}$

(11)

1.2 剂量估算方法

1.2.1 污泥排放模型

1.2.1.1 污水处理站工作人员照射剂量

污水处理站的工作人员可能会受到放射性核素 排放导致的辐射照射,主要来源于污泥的地面外照 射以及由再悬浮污泥引起的吸入内照射。在估算照 射剂量时,考虑核素从医疗机构排放到污水处理站 经过 12 小时的衰减过程。

污水处理站工作人员受到被污染污泥的地面沉 积外照射所致剂量计算公式为:

$$E$$
 $_{污h} = C$ $_{污k} DF$ $_{thin} Q$ $_{f}$

(12)

式中: E_{FM} 一污水处理站工作人员受到被污染污泥所导致的地面沉积外照射剂量(Sv/a); DF_{th} 一地面沉积外照射有效剂量转换因子(Sv·s·l/Bq·m-2),99mTc、 131 I、 90 Y、 223 Ra 分别为 $^{[12]}$ 7.06× $^{10-17}$ 、2.44× $^{10-16}$ 、1.46× $^{10-16}$ 、7.86× $^{10-17}$; Q_{f} 一保守考虑每天处理污泥时间 2h,年工作 250天 h,照射居留因子(2× 250 × 3600 =1.8× $^{10^6}$ s)。

污水处理站工作人员受到再悬浮污泥吸入内照射所致剂量计算公式:

$$C$$
 污泥 R $_{
m inh}DF$ $_{
m inh}Q$ $_{
m f}DL$

(13)

式中: E_{Bh} 一污水处理站工作人员受到被污染污泥再悬浮吸入所致内照射剂量(SV/a); R_{ing} 一

年吸入速率(8400 m^3/a)[7]; DF_{inh} 一吸入内照射有效剂量转换因子(Sv/Bq), $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 ^{131}I 、 ^{90}Y 、 ^{223}Ra 分别[13]为 1.20×10^{-11} 、 7.40×10^{-9} 、 1.70×10^{-9} 、 6.90×10^{-6} ; Q_{f} 一年工作时间 2000h,照射居留因子(0.228); DL 一再悬浮而产生的粉尘负荷(0.1mg/m^3)[7]。

1.2.1.2 垃圾焚烧厂工作人员照射剂量

垃圾焚烧厂的工作人员可能会受到来自污水处理厂的污泥的照射,主要来源于污泥燃烧过程中产生的吸入内照射和浸没外照射。在估算照射剂量时,考虑核素从医疗机构转移至垃圾焚烧厂经过24小时的衰减过程。

垃圾焚烧厂工作人员受到燃烧释放到空气中的 放射性核素吸入内照射所致剂量计算公式:

$$E \quad _{\cancel{w}\not\cap} = C \quad _{\cancel{w}}R \quad _{\mathrm{inh}}DF \quad _{\mathrm{inh}}Q \quad _{\mathrm{f}}$$

(14)

式中: E_{yh} 一垃圾焚烧厂工作人员受到燃烧释放到空气中放射性核素所致内照射剂量(Sv/a);式中其他符号含义同公式(13)。

垃圾焚烧厂工作人员受到燃烧释放到空气中的 放射性核素浸没外照射所致剂量计算公式:

$$E \quad _{\stackrel{\text{th}}{}} = C \quad _{\stackrel{\text{th}}{}} DF \quad _{\text{im}} Q \quad _{\text{f}}$$

(15)

式中: E_{yh} —垃圾焚烧厂工作人员受到燃烧释放 到空气中放射性核素浸没外照射所致剂量(Sv/a); DF_{im}—浸没外照射剂量转换因子(Sv m³ Bq⁻¹S⁻¹), ^{99m}Tc、¹³¹I、 ⁹⁰Y、 ²²³Ra 分别^[12]为5.14×10⁻¹⁵、1,69×10⁻¹⁴、3.18×10⁻¹⁵、5.40×10⁻¹⁵;O_f—年工作时间 2000h。

1.2.2 河水排放模型

废水排放放射性核素全部滞留在水中排放到河 水中,本文中考虑同一名公众受到来自河水中放射 性核素三种来源的照射,分别是河床沉积物产生的 外照射,食用河水中的鱼和农作物产生的内照射。

公众受河床沉积物外照射所致剂量 $E_{\pi,h}$ 计算公式:

$$E_{\text{inf}} = C_{\text{pin}} DF_{\text{thin}} Q_{\text{f}}$$

(16)

式中: E 流外一公众受到河床沉积物产生的外照射(Sv/a); 式中其他符号含义同公式(12)。 公众食入淡水鱼内照射所致剂量计算公式:

$$E_{\text{fig}} = C_{\text{fig}} H_{\text{fig}} DF_{\text{fig}}$$

(17)

式中: E_{he} —公众人员食入河水中淡水鱼所致内照射剂量(Sv/a); H_{he} —鱼的年消耗量(35kg/a); DF_{ing} —食入内照射有效剂量转换因子(Sv/Bq), $^{99\text{m}}$ Tc、 131 I、 90 Y、 223 Ra 分别为 2.20× 10^{-11} 、2.20× 10^{-8} 、2.70× 10^{-9} 、1.00× $10^{-7[13]}$ 。

$$E_{hd} = C_{hd} H_{hd}DF_{inq}$$

(18)

式中: E_{th} 一公众人员食入河水灌溉农作物所

致内照射剂量(SV/a); H_{α} 一鱼的年消耗量(510kg/a)。

2.废水解控值确定方案

基于 1.1 节的计算公式,分别计算污泥排放模型和河水排放模型对公众的照射剂量,每个模型同一人群的照射途径叠加计算获得相应模型对公众照射剂量,两种模型的剂量不再叠加。采用选定的剂量管理值与两种模型计算得到的剂量的比值获得相应模型的排放限值,对某一个核素的解控值选择两种模型中的较小值。废水排放限值确定过程如图 1 所示。

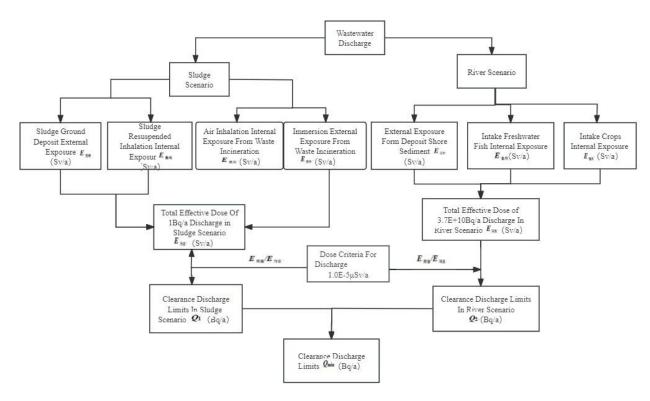


图1 废水排放限值导出过程

Figure 1: The scheme of deriving the liquid discharge clearance limit

3分析与讨论

3.1 河水排放模型相关环境介质放射性核素浓度

基于 1.1.2 节废水河水排放模型描述,废水排放对公众成员产生附加辐射剂量,需要获得河水中放射性核素总浓度 $C_{x,\hat{y}}$ 、河水中溶解的放射性核

素浓度 $C_{\text{**ARM}}$ 、河水中河岸沉积物的放射性核素浓度 $C_{\text{**EM}}$ 、淡水鱼的放射性核素浓度 $C_{\text{**EM}}$ 、浓水鱼的放射性核素浓度 $C_{\text{**EM}}$ 、农作物表面沉积和从土壤中摄取的放射性核素浓度之和 $C_{\text{**EM}}$,按照公式(2)~(11)及文中给出的参数取值,得到相关环境介质中的放射性核素浓度如表 1 所示。

表 1 河水及食物中放射性核素浓度

Table 1: Radionuclides Concentration in River Water and Food"

核素	C _{水总} (Bq·m ⁻³)	C 水,溶解 (Bq·m ⁻³)	C _{岸流} (Bq·kg ⁻¹)	$C_{\underline{a}}$ (Bq·kg ⁻¹)	C _植 (Bq·kg ⁻¹)
^{99m} Tc	3.02×10^{2}	3.02×10^{2}	8.98×10 ⁻³	6.04	2.09×10^{-1}
¹³¹ I	3.15×10^2	3.15×10^2	6.01×10^{-1}	1.26×10^{1}	4.16

⁹⁰ Y	3.15×10^{2}	3.14×10^{2}	7.96×10^{-1}	9.42	1.83
²²⁶ Ra	3.16×10^{2}	3.08×10^{2}	4.17×10^{1}	1.54×10^{1}	5.02

3.2 污泥排放模型污水处理站公众剂量及排放限值基于 1.1.1 节污泥排放模型,废水排放接受污水处理站对人员产生污泥地面沉积外照射剂量 $E_{\it FPM}$ 和污泥再悬浮吸入内照射剂量 $E_{\it BPM}$ 两个来源的照射,

保守假定污水处理站工作人员受到两个途径的叠加 照射 E_{Fil} ,基于公众年照射剂量 E_{Fil} 10 μ Sv 的标准推导核素的解控限值 Q_1 如表 2 所示。

表 2 污泥排放污水处理站模型推导解控值

Table 2: Derived liquid discharge limits for sludge discharge at sewage treatment station model

核素	$E_{$ 污外($Sv \cdot a^{-1}$)	E $_{\rm \&h}$ (Sv·a ⁻¹)	$E_{$ 污息($SV \cdot a^{\text{-}1}$)	$E_{ar{k}}$ (Sv⋅a ⁻¹)	$Q_1(Bq\!\cdot\!a^{\text{-}1})$
^{99m} Tc	3.19×10^{-14}	5.77×10^{-22}	3.19×10^{-14}	1.00×10^{-5}	3.14×10^{8}
^{131}I	4.21×10^{-13}	1.36×10^{-18}	4.21×10^{-13}	1.00×10^{-5}	3.38×10^{7}
^{90}Y	2.32×10^{-13}	2.86×10^{-19}	2.31×10^{-13}	1.00×10^{-5}	4.30×10^{7}
²²⁶ Ra	1.37×10^{-13}	1.28×10^{-15}	1.39×10^{-13}	1.00×10^{-5}	7.22×10^{7}

3.2 污泥排放模型垃圾焚烧厂公众剂量及排放 限值

基于 1.1.1 节污泥排放模型,核医学废水排放接受污水处理站产生污泥转移至垃圾焚烧厂进行焚烧,对人员产生焚烧污染空气吸入内照射剂量 E_*

内和焚烧污染空气浸没外照射剂量 $E{\text{矮}}$,两个来源的照射,保守假定垃圾焚烧厂工作人员受到两个途径的叠加照射 E_{Fib} ,基于公众年照射剂量 E_{Fi} 10 μ Sv标准推导核素的解控限值 Q_1 如表 3 所示。

表 3 污泥排放垃圾焚烧厂模型推导解控值

Table 3: Derived liquid discharge limits for sludge discharge at waste incineration plant model

核素	$E_{{ m the the the the the the the the the the$	$E_{ { m th}} ({ m Sv} \cdot { m a}^{-1})$	$E_{$ 污息 $\cdot}$ ($Sv \cdot a^{-1}$)	$E_{\bar{\imath}\!$	Q_{1} (Bq·a ⁻¹)
^{99m} Tc	8.04×10^{-19}	1.29×10^{-18}	2.10×10^{-18}	1.00×10^{-5}	4.77×10^{12}
^{131}I	3.61×10^{-13}	3.10×10^{-15}	3.64×10^{-13}	1.00×10^{-5}	2.75×10^{7}
⁹⁰ Y	1.40×10^{-15}	9.80×10^{-18}	1.41×10^{-15}	1.00×10^{-5}	7.11×10^9
²²³ Ra	6.91×10^{-13}	2.03×10^{-18}	6.91×10^{-13}	1.00×10^{-5}	1.45×10^{7}

3.3 河水排放模型公众剂量及排放限值

基于 1.1.2 节河水排放模型,来自河水中放射性核素三个途径的照射考虑均施加到一名公众成员,包括沉积物岸边外照射剂量 E_{TM} , 摄入河内淡水

鱼内照射剂量 E_{flap} ,摄入河水灌溉农作物导致内照射 E_{flap} ,公众成员三个途径叠加照射剂量为 E_{flap} ,基于公众年照射剂量 E_{flap} 10 μ Sv 的标准推导核素的解控限值 Q_2 如表 4 所示。

表 4 河水排放模型推导解控值

Table 4: Derived liquid dischargelimits for River Water Discharge Model

核素	$E_{ ilde{ imes}}$ ($Sv \cdot a^{ ext{-}1}$)	$E_{ extstyle \underline{a}}$ (Sv·a ⁻¹)	E_{dip} ($SV \cdot a^{-1}$)	E 河总($Sv \cdot a^{-1}$)	$E_{ \bar{\imath} \bar{\imath}} $	$Q_{2}(Bq\cdota^{-1})$
^{99m} Tc	1.14×10^{-9}	4.65×10^{-9}	2.35×10^{-9}	8.14×10^{-9}	1.00×10^{-5}	4.55×10^{13}
^{131}I	2.64×10^{-7}	9.71×10^{-6}	4.67×10^{-5}	5.67×10^{-5}	1.00×10^{-5}	6.53×10^9
^{90}Y	2.09×10^{-7}	8.90×10^{-7}	2.51×10^{-6}	3.61×10^{-6}	1.00×10^{-5}	1.02×10^{11}
²²³ Ra	5.90×10^{-6}	5.39×10^{-5}	2.56×10^{-4}	3.16×10^{-4}	1.00×10^{-5}	1.17×10^9

3.4 放射性核素废水排放限值

基于 2 节放射性核素废水排放限值探讨方案,废水排放分别计算两种场景对公众成员的年有效剂量,并分别导出其放射性核素年排放限值,其中排放限值较小场景作为管理部门的排放限值。本文场景计算的 99mTc、131I、90Y、223Ra 四种核素废水排放限值取污泥排放模型和河水排放模型中的较小值,分别为 3.14×108Bq/a、2.75×107Bq/a、4.30×

 10^7 Bq/a、 1.45×10^7 Bq/a。在液态放射性废物排放或解控管理过程中,对导出排放或解控限值通常采取四舍五入处理,上述四种核素的解控值可取值为 1.0×10^8 Bq/a、 1.0×10^7 Bq/a、 1.0×10^7 Bq/a。

对于同时开展多种核素的医疗机构,应确定每一种核素的排放限值,每种核素的排放限值与导出排放限值之比的和小于1,每种核素方可排放。

4 结论

核医学科应用放射性核素规模比较小,对于产生少量低活度放射性废液,采用解控排放管理可能是一个更优化的管理过程。解控排放管理的前提是需要有明确的解控管理值,本文确定的解控管理值是对公众的年照射剂量为 10μSv。本文通过对四种核素解控值的推导过程,介绍了解控排放数值确定的思路。由 9mTc、131I、90Y、223Ra 四种核素解控值推导过程来看,9mTc、90Y解控排放值主要是由污泥排放污水处理站模型地面沉积外照射影响所决定,131I、223Ra 解控排放值主要是由污泥排放垃圾焚烧厂模型空气吸入内照射影响所决定。放射性核素全部滞留在水体的场景,废水排放至河水中,流动性强,稀释能力大,相应的解控排放限值相对较高;放射性核素全部滞留在污泥的场景,稀释系数低,且考虑排放至公众照射的衰变时间短,相应的解控排放限值相对较低。近几年建设的污水处理站自动化程度相对较高,污水处理站产生的污泥已实现全程封闭管理,地面沉积外照射途径可能已经不是重要的照射途径。但是早期建设的污水处理站仍然存在需要人工铲除污泥的工作,因此,从通用解控排放值导出过程来看,仍然需要考虑污水处理站污泥外照射影响。如核医学科申请特定的解控数值,可以根据其污水和污泥接受的实际情况开展相关评估以导出特定的排放数值。

国际原子能机构技术报告《在医学、工业和研究中使用放射性核素所产生的材料的解控》[5]未开展 223 Ra 解控排放数值推导相关工作, 99m Tc、 131 I、 90 Y 排放至水体中的解控数值分别为 1.0×10^{11} Bq/a、 1.0×10^{10} Bq/a、 1.0×10^{8} Bq/a。《英格兰和威尔士环境许可条例》[14]规定, 99m Tc、 131 I、 90 Y、 223 Ra 排放至城市下水管网的排放限值分别为 3.7×10^{7} Bq/a、 1.0×10^{6} Bq/a、 1.0×10^{7} Bq/a、 1.0×10^{5} Bq/a。除 223 Ra 解控排放值较高,分析是参考相关文献 223 Ra 焚烧释放活度选取源活度 1%的原因。

我国医用放射性核素废水主要是通过储存衰变[15]达到解控水平后通过下水系统排放。本文介绍了通过下水系统污泥排放和河水排放两种模型对公众产生的剂量,在解控排放值导出过程中假定放射性废水是一年中均匀排放,与我国核医学废水实际排放方式有所差别,储存衰变后污泥中的放射性核素衰变时间将远大于本文污泥排放模型考虑的衰变时间。对于河水排放模型,由于是间歇性排放,水体中、水生和陆生食物中放射性核素浓度可能存在不完全平衡的情形,某些区域活度高一些,而另外一些区域活度低一些,因此对于废水间歇性排放,在不需要过分保守的情况下,可考虑选用未稀释模型进行导出,同时考虑间歇排放的时间占比将低于本文讨论地对公众的照射时间。

作者贡献声明 姜文华主要负责论文撰写、理论模型计算;彭慧和党磊负责模型估算实际场景调研;许莹负责论文图表编排;王寅宁负责数据结果整理分析。

参考文献 (References)

- [1] 楼菁菁,李童童,刘兴党,等.²²³Ra 对去势抵抗性前列腺癌骨转移疗效的核医学评估研究进展[J].核技术,2021,44(12).DOI:10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.120301.
- LOU Jingjing, LI Tongtong₃,LIU Xingdang et al.Recent progress of nuclear medicine evaluation of curative effect of ²²³Ra dichloride treatment on castration- resistant prostate cancer and bone metastases[J].NUCLEAR TECHNIQUES,2021(044):120301/1-120301/7,DOI:10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.120301.
- [2] Jiang B, Tian BB, Jing HT, et al. Feasibility of medical radioisotope production based on the proton beams at China Spallation Neutron Source[J]. Nuclear Science and Techniques, 2024, 35(6):26-39. DOI:10.1007/s41365-024-01438-w.
- [3]张琪,葛云文.基于排放总量控制的核医学衰变池容量及最小暂存时间计算[J].核技术,2024, 47(4):51-57.DOI:10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.040301.
- ZHANG Qi,GE Yunwen.Calculation of decay tank capacity and minimum storage time for the wastewater of nuclear medicine department based on the total emission control[J].NUCLEAR TECHNIQUES,2024,47(4):51-57.DOI:10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.040301.

- [4] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Derivation of Activity Concentration Values for Exclusion, Exemption and Clearance, Safety Reports Series No. 44, IAEA, Vienna (2005).
- [5] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Clearance of Materials Resulting from the Use of Radionuclides in Medicine, Industry and Research, IAEA-TECDOC-1000, IAEA, Vienna (1998).
- [6] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Application of the Concept of Clearance, IAEA Safety Standards Series No. GSG-18, IAEA, Vienna (2023).
- [7] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment, Safety Reports Series No. 19, IAEA, Vienna (2001). [8]余锐.小型城市生活垃圾处理工艺设备浅析[J].机械工业应用,2024(31):80-83.

Yu R.An Analysis of the Waste Management Processes and Equipment in Small Cities[J]. Applications in the Mechanical Industry, Applications in the Mechanical Industry, 2024(31):80-83.

[9]中华人民共和国住房和城乡建设部. 建筑防烟排烟系统技术标准:GB51251-2017[S].北京,中国计划出版社,2017.

Ministry of Housing and Urban-Rural Development of the People's Republic of China. Technical Specifications for Building Smoke Control and Exhaust Systems: GB51251-2017[S]. Beijing, China Planning Press, 2017.

- [10]INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Generic procedures for assessment and response during a radiological emergency, IAEA-TECDOC-1162, IAEA, Vienna (2000).
- [11] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Reports Series No. 472, IAEA, Vienna (2010).
- [12] United States Environmental Protection Agency, Enternal Exposure to Radionuclides in Air, Water and Soil, FEDERAL GUIDANCE REPORT NO.15, U.S. Environmental Protection Agency, Washington 2019.
- [13]中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局,中国国家标准化管理委员会. 电离辐射防护与辐射源安全基本标准: GB18871—2002 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2002.

General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. Basic standards for protection agains ionizing radiation and for the safety of radiation sources: GB/T 18871—2002 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2002. (in Chinese)

[14] The Environmental Permitting (England and Wales) Regulations 2016.

https://www.legislation.gov.uk/cy/uksi/2016/1154/contents

[15]中华人民共和国生态环境部.HJ1188-2021 核医学辐射防护与安全要求[S].中华人民共和国生态环境部, 2021.

Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Radiation Protection and Safety Requirements for Nuclear Medicine.HJ1188-2021.[S]Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China,2021.

Derivation of discharged level for four radiopharmaceutical liquid

JIANG Wenhua, PENG Hui, Dang Lei, XU Ying, WANG Yinning

Radiation Source Department, Nuclear and Radiation Safety Center, Ministry of Ecology and Environment,

Beijing 102488, China

Abstract: Background: With the escalating demand for radiopharmaceutical, it is imperative to implement effective supervision on the discharge of radioactive nuclides. Objective: This study aims to investigate and optimize the management limits for the discharge of radiopharmaceutical wastewater to ensure public health and environmental safety. Method: This study performed a comprehensive analysis to establish clearance limits of radioactive wastewater for four radionuclides: 99mTc, 131I, 90Y, and 223Ra, based on the environmental impact assessment model proposed by the International Atomic Energy Agency (IAEA). The analysis focused on the potential impact on the public under two scenarios: one where all radionuclides remain in the sludge and another where they remain in the water body then being discharged into the river. The derived clearance limits were determined based on the criterion that the annual effective dose to the public from annual radiopharmaceutical releases should not exceed 10 \(\mu\) Sv. **Results:** The clearance discharge limits of the four radiopharmaceutical in wastewater are 3.14×10^8 Bg/a for 99m Tc, 2.75×10^7 Bg/a for 131 I, 4.30×10^7 Bg/a for 90 Y, and 1.45×10^7 Bg/a for ²²³Ra. By determining the annual generated volume of radioactive wastewater from nuclear medical institutions, the clearance discharge limits can be transformed into the discharge activity concentration. Conclusion: The clearance discharge limits for 99mTc and 90Y are mainly determined by the ground deposit external radiation exposure from sewage treatment plants scenario in which radiopharmaceutical is considered discharged to sludge, while for ¹³¹I and ²²³Ra are mainly determined by the air inhalation internal radiation exposure from waste incineration plants scenario in which radiopharmaceutical is considered discharged to sludge.River water possesses remarkable fluidity and dilution capabilities. Consequently, the discharge limits for radiopharmaceutical wastewater are primarily determined by the scenario of nuclides remaining in sludge.

Key words: radiopharmaceutical; waste liquid; clearance; discharge limits